

METHOD OF BONDING**BEST AVAILABLE COPY**

Patent number: JP6100840
Publication date: 1994-04-12
Inventor: UMEDA MICHIO
Applicant: NITTO DENKO CORP
Classification:
- international: C09J5/08
- european:
Application number: JP19920273841 19920916
Priority number(s):

[Report a data error here](#)**Abstract of JP6100840**

PURPOSE: To provide a bonding method whereby a thermosetting adhesive or adhesive sheet can be rapidly cured by heating to give a bond excellent in balance between adhesive strength on peeling and adhesive strength under shear within a short time.

CONSTITUTION: An adhesive comprising a polymer having one to eight radical-reactive unsaturated bonds on the average per molecule and a glass transition temperature of -50 to 50 deg.C, a monomer having at least one radical-reactive unsaturated bonds in the molecule and a radical reaction initiator is cured by high-frequency heating in the presence of a magnetic substance or/and a conductor. Thus, even when the adhesive contains a reaction initiator having a high decomposition temperature to improve its long-term storage stability, bonding can be effected within a short time by rapid high-frequency heating.

Data supplied from the esp@cenet database - Patent Abstracts of Japan

(10)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-100840

(13)公開日 平成6年(1994)4月12日

(51)Int.Cl.
C 0 9 J 5/06識別記号
J G V序内整理番号
7415-4 J

P I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 1(全 4 頁)

(21)出願番号 特願平4-273841

(22)出願日 平成4年(1992)9月16日

(71)出願人 000008984

日東電工株式会社

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号

(72)発明者 梅田 道夫

大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東
電工株式会社内

(74)代理人 弁理士 藤本 勉

(54)【発明の名称】接着方法

(57)【要約】

【目的】 熟硬化型の接着剤ないし接着シートを速やかに加熱硬化できて短時間で剥離接着力と剪断接着力とのバランス及び耐熱性に優れる接着処理を行える方法を得ること。

【構成】 分子中にラジカル反応性不飽和結合を平均1～8個有してガラス転移温度が-50～50℃の重合体と、分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体と、ラジカル反応開始剤を成分とする接着剤を、磁性体又は／及び導電体の使用下に高周波で加熱硬化させる接着方法。

【効果】 分解温度の高い反応開始剤を含有させて長期保存性を高めた接着剤の場合にも高周波による速やかな加熱で短時間で接着処理を行える。

【特許請求の範囲】

【請求項1】分子中にラジカル反応性不飽和結合を平均1～8個有してガラス転移温度が-50～50℃の重合体と、分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体と、ラジカル反応開始剤を成分とする接着剤を、磁性体又は／及び導電体の使用下に高周波で加熱硬化させることを特徴とする接着方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、短時間で剥離接着力と剪断接着力とのバランス、耐熱性に優れる接着処理を行うことができる接着方法に関する。

【0002】

【従来の技術】作業の簡便化や安全衛生の向上等を目的に、それまでの液状の接着剤を塗布乾燥する方式に代えて、予め形成した接着シートを介して接着処理する方式が多用されている。従来、かかる接着シートとしては、エポキシ系接着シートが知られていた。しかし、良好な接着力を発現させるためには高温での長時間の加熱処理を要して作業効率に劣る上に、接着体が高温劣化する問題点があった。短時間での接着処理が可能な接着シートとしてはホットメルト型のものがあるが、高温下での接着力に劣る難点がある。

【0003】一方、ラジカル反応開始剤を含浸させた多孔性シートに不飽和化合物層を積層してなる接着シートも提案されている（特公昭57-13425号公報）。しかしながら、かかる接着シートによる接着処理は、剥離接着力と剪断接着力とのバランスに劣る問題点があった。

【0004】前記に鑑みて本発明者が属するグループは、先に低ガラス転移温度の重合体とラジカル反応性単量体とラジカル反応開始剤を成分とする接着剤ないしその接着シートを提案した（特願平3-48893号）。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記接着剤ないしその接着シートを速やかに加熱硬化でき、短時間で剥離接着力と剪断接着力とのバランス及び耐熱性に優れる接着処理を行うことができる接着方法の開発を課題とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】本発明は、分子中にラジカル反応性不飽和結合を平均1～8個有してガラス転移温度が-50～50℃の重合体と、分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体と、ラジカル反応開始剤を成分とする接着剤を、磁性体又は／及び導電体の使用下に高周波で加熱硬化させることを特徴とする接着方法を提供するものである。

【0007】

【作用】前記の接着剤は加熱処理で低ガラス転移温度の重合体とラジカル反応性単量体がラジカル反応開始剤を

介し反応して硬化し、剥離接着力と剪断接着力とのバランスや耐熱性に優れた接着力が発現するものであるが、かかる接着剤に磁性体又は／及び導電体を含有させて高周波による誘導加熱で硬化させる方法とすることにより、接着層内部より速やかに高温に加熱できて分解温度の高いラジカル反応開始剤を含有する場合にも短時間で接着処理できる。分解温度の高いラジカル反応開始剤の使用は接着剤の保存性の向上に有効で、従って常温等で長期間、安定して保存できる接着剤、ないし接着シートを形成することができる。

【0008】

【発明の構成要素の例示】本発明の接着方法は、熱硬化型の接着剤を磁性体又は／及び導電体の使用下にその磁性体又は／及び導電体を高周波で誘導加熱して接着剤を加熱硬化させるものである。用いる熱硬化型の接着剤は、分子中にラジカル反応性不飽和結合を平均1～8個有し、かつガラス転移温度が-50～50℃の重合体と、分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体と、ラジカル反応開始剤を成分とするものである。

【0009】好ましく用いうる重合体は、分子中有するラジカル反応性不飽和結合が平均1.5～4個のものである。そのラジカル反応性不飽和結合の平均数が1個未満では、剪断接着力の発現性に乏しいし、8個を超えると剥離接着力の発現性に乏しい。

【0010】好ましく用いうる重合体の例としては、アクリル系重合体、ポリエステル系重合体、酢酸ビニル系重合体、水添ゴム系重合体などがあげられる。重合体は必要に応じて2種以上が併用される。重合体のガラス転移温度が-50℃未満では剪断接着力の発現性に乏しいし、50℃を超えると耐衝撃性に乏しい接着特性となる。

【0011】重合体におけるラジカル反応性不飽和結合は、併用の単量体が有するラジカル反応性不飽和結合との反応に関与するものである。その例としては、ビニル基、アクリロイル基、メタクリロイル基、ビニルベンジル基などに基づくものがあげられる。

【0012】ラジカル反応性不飽和結合を有する重合体の調製は、ベースポリマーにその末端官能基、ないし側鎖官能基を介して、かかる官能基と反応しうる官能基と不飽和結合を有する化合物、例えばグリシジルメタクリレート、グリシジルアクリレート、2-メタクリロイルオキシエチルイソシアネート等を反応させて導入する方式などにより行うことができる。

【0013】また重合体をラジカル重合方式で調製する際に、ラジカル反応性不飽和結合を2個以上有する単量体を共重合させる方式や、非ラジカル重合系の場合には、重合反応に関与するエポキシ等の官能基のほかにラジカル反応性不飽和結合を有する単量体を共重合させる方式などによっても目的とする重合体を調製することが

できる。

【0014】分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体としては、エポキシアクリレート類、ポリエステルアクリレート類、ウレタンアクリレート類、ビニル系モノマー類などがあげられる。エポキシアクリレート類、ポリエステルアクリレート類、ウレタンアクリレート類としては、特に限定ではなく市販品等の種々のものを用いることができる。

【0015】ビニル系モノマー類としては、炭素数1～14のアルキル基を有するアクリレートないしメタクリレートやその誘導体、アジピン酸ジビニル、2-エチルヘキサン酸ビニル、ジビニルベンゼン、トリアリルシアヌレートなどが好ましく用いられる。

【0016】分子中にラジカル反応性不飽和結合を少なくとも1個有する単量体は1種又は2種以上が用いられる。その使用量は、分子中にラジカル反応性不飽和結合を平均1～8個有してガラス転移温度が-50～50℃の重合体100重量部あたり、10～200重量部、就中20～100重量部が適当である。かかる単量体の使用量が前記範囲外では、剥離接着力と剪断接着力と耐熱性とをバランスさせにくい。

【0017】ラジカル反応開始剤としては、併用の重合体と単量体を加熱処理下に、それらのラジカル反応性不飽和結合を介して硬化反応させうるものが用いられる。ラジカル反応開始剤は1種又は2種以上を用いることができ、その使用量は適宜に決定してよいが保存性、硬化作業性、接着特性等の点よりは0.2～3重量%の含有割合が好ましい。

【0018】ラジカル反応開始剤としては種々のものを使いうるが、接着剤の保存性、例えば熱硬化性や良好な接着特性の長期発現性等の点よりは、半減期の長いもの、特に10時間半減温度が80℃以上のものが好ましい。

【0019】好ましく用いうるラジカル反応開始剤としては、例えばジクミルパーオキシド、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、クメンハイドロパーオキシド、2,5-ジメチルヘキサン-2,5-ジヒドロパーオキシドの如き有機過酸化物、2-フェニルアゾー-4-メトキシ-2,4-ジメチルバレロニトリル、2,2-アゾビス(2-メチルプロパン)の如きアゾ系化合物などがあげられる。

【0020】接着剤を高周波で誘導加熱するために用いられる磁性体、導電体としては、例えば鉄、ニッケル、銅、アルミニウム、チタン、亜鉛、錫の如き単体を主成分とするもの、SUS340等のステンレス鋼やペーマロイの如き合金、フェライトの如き金属酸化物、鉄・コバルトの如きアモルファス合金などの種々のものを用いることができる。

【0021】磁性体又は導電体は、2種以上を用いてもよく、それらを併用してもよい。用いる形態は、例え

繊維状や粉末状等の接着剤に分散配合できる形態、箔状やネット状等の接着剤の芯材ないし支持材としての形態など、適宜に決定することができる。

【0022】本発明で用いる接着剤は、上記した各成分を例えれば溶媒を用いて混合する方式、3本ロールやミキシングロール、パンパリーミキサー等で混練する方式などの適宜な方式で混合することにより調製することができる。指状やネット状等の磁性体ないし導電体の場合には、それに接着剤を塗布するなどして介在形態とすることにより高周波による誘導加熱が可能なものとすることができる。接着剤の調製に際しては、接着剤や感圧接着剤に通常用いられる添加剤、例えは充填剤、顔料、着色剤、可塑剤などを添加することができ、その接着剤には感圧接着剤の如き粘着力をもたせることもできる。

【0023】本発明の方法においては、前記の接着剤を塗布する方式などの適宜な方式で用いうるが、好ましくは接着シートとして用いる方式である。接着シートは、上記した接着剤からなる層を支持体の片面又は両面に設けることにより得ることができる。その接着剤層は、支持体に固定されたものであってもよいし、支持体より剥離できるようにしたものであってもよい。剥離可能なタイプは、例えは剥離剤で処理した支持体を用いる方式などにより形成することができる。

【0024】支持体には、例えはプラスチックフィルム、紙、不織布などの適宜なものを用いてよい。支持体に設ける接着剤層の厚さは1～500μmが一般的であるが、これに限定されず使用目的に応じた適宜な厚さとしてよい。なお磁性体ないし導電体として箔状やネット状等のものを用いた場合には、それを接着剤層の支持体とすることもできるし、芯材として接着剤層中に介在させることもできる。

【0025】本発明の方法による接着処理は例え、被着体に接着剤層ないし接着シートを設け、それを高周波で誘導加熱して硬化させることにより行うことができる。高周波発振機としては、接着剤中の磁性体や導電体、ラジカル反応開始剤の種類や量、接着剤層の厚さなどに応じて適宜なものを用いうる。一般には、周波数10～100kHz、出力0.5～200kW程度のものが用いられる。

【0026】本発明の接着方法は、ベニヤ板の如き木材の接着、ガラス板や陶器品の如きセラミック品の接着、プラスチック品の接着、金属品の接着、それらの異種材料間の接着など、種々の接着に適用することができる。

【0027】

【発明の効果】本発明によれば、分解温度の高い反応開始剤を含有させて長期保存性を高めた接着剤の場合にも、剥離接着力と剪断接着力のバランスや耐熱性に優れる接着処理を高周波による速やかな加熱で短時間で行うことができる。

【0028】

(4)

特開平6-100840

【実施例】

参考例

冷却管、空素導入管、温度計、攪拌器を備えた反応容器に酢酸エチル50部(重量部、以下同じ)とトルエン50部を溶媒として、アクリル酸2-エチルヘキシル6.5部、酢酸ビニル20部、アクリル酸1.5部、アクリル酸2-ヒドロキシエチル0.1部、2-メルカプトエタノール0.06部、2,2'-アゾビス-2-シアノプロパノール0.2部を入れて窒素気流中で重合処理し、ジブチル錫ジラウレート0.1部と2-メタクリロイルオキシエチルイソシアネート0.28部を添加し反応させて重量平均分子量38万のアクリル系重合体の溶液を得た。

【0029】実施例1

参考例で得た溶液にその固形分100部あたり、ポリエステルアクリレート40部、ジクミルパーオキシド1部を添加して接着剤溶液を調製し、それをセパレータ上に塗布し、80℃で2分間乾燥処理して厚さ80μmの接着剤層を形成し、これを厚さ30μmのアルミニウム箔の両面に付設して接着シートを得た。

【0030】次に、12×25mmの前記接着シートを用いて3×25×80mmのベニヤ板の一対を接着剤層の粘着力を利用して張り合わせ、それを出力0.8kw、周波数4.5kHz、発振時間30秒間の条件で高周波により誘導加熱して硬化させ30分間放置した後その剪断接着力(初期)を調べた(引張速度5mm/分、23℃、65%RH)。また接着シートを60℃下に20日間保存し、それを用いて前記に準じ剪断接着力(保存後)を調べた

【0031】実施例2

実施例1に準じて、アルミニウム箔に代えてエキスパンドメタル3/0を用いた接着シートを得、初期及び保存後の剪断接着力を調べた。

【0032】実施例3

参考例で得た溶液にその固形分100部あたりポリエステルアクリレート40部とクメンハイドロパーオキシド1部を添加して接着剤溶液を調製し、それを用いて実施例1に準じて接着シートを得、初期及び保存後の剪断接着力を調べた。

【0033】比較例1

参考例で得た溶液にその固形分100部あたりポリエステルアクリレート40部、過酸化ベンゾイル1.5部を添加して接着剤溶液を調製し、それをセパレータ上に塗布し80℃で2分間乾燥処理して厚さ80μmの接着剤層を形成し、これを厚さ25μmのポリエステルフィルムの両面に付設して接着シートを得た。次に、12×25mmの前記接着シートを用いて3×25×80mmのベニヤ板の一対を接着剤層の粘着力を利用して張り合わせ、それを120℃×0.5kg/cm²×3分間の条件で加熱圧着下に硬化させ30分間放置した後、実施例1に準じて初期及び保存後の剪断接着力を調べた。

【0034】比較例2

実施例3で調製した接着剤溶液を用いて比較例1に準じて接着シートを得、初期及び保存後の剪断接着力を調べた。

【0035】前記の結果を表1に示した。

【表1】

	剪断接着力(kg/cm ²)	
	初期	保存後
実施例1	31.0	27.7
実施例2	32.0	29.8
実施例3	30.0	29.0
比較例1	32.3	8.8
比較例2	7.2	8.0

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT OR DRAWING
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- GRAY SCALE DOCUMENTS
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.